

昭45-14404

⑪特許公報

⑫公告 昭和45年(1970)5月22日

⑬発明の名称

(全6頁)

⑭水素の分離精製装置

⑮特 願 昭39-6456

⑯出 願 昭39(1964)2月8日

⑰発 明 者 江口孝

茅ヶ崎市茅ヶ崎11151

同

後藤良亮

東京都世田谷区烏山町282芦花  
公園住宅1の403

⑱出 願 人 日本水素株式会社

東京都千代田区内幸町2の22

代 表 者 江口孝

⑲図面の簡単な説明

第1図は本発明において細管ユニットにペロー  
を使用した水素の分離精製装置の縦断面図である。

第2図は本発明において細管ユニットにスパイ  
ラル管を使用した水素の分離精製装置の縦断面図で  
ある。第3図は、第1図および第2図における細

管ユニットのA-A断面の四分内の拡大図である。

⑳発明の詳細な説明

本発明は水素含有気体を加熱されたパラジウム  
合金製の比較的管径の小さい管内に圧入して選択  
的に水素ガスのみをパラジウム合金製細管の外部  
に透過させて、パラジウム合金製細管を囲んだ外  
筒の内部に集めて外部に導出するための所謂混合  
気体から純水素を分離ならびに精製する水素透過  
装置に関する。

水素含有気体から水素のみを選択的に透過する  
ためには特にパラジウム合金が工業的に有用であ  
つて、パラジウム合金の成分に関しては特許第  
408573号、特許第407879号並びに水  
素分離精製装置のパラジウム体の構造に關しては  
特許第403440号が本発明者等により既に提  
供されている。

さて、従来公表された水素分離精製装置のパ  
ラジウム体の構造は次に挙げるものが外国に提案さ  
れているが、製作が容易でないもの及び換能的な

欠点を持つものが多い。先ず第1に、米国特許  
第2911057号(1959年)に於いては3

～4mmの外径で肉厚0.1mm、長さ4～5mのパ  
ラジウム細管を同一長さで用意して、1本をコイル

5 状に密に巻き、この第1のコイル管と反対方向の  
巻きに第2の管をコイル状に密着して重ね巻きし、

次いで第3の管を同様に第2のコイル管と反対方  
向の巻きにコイル状に密着して重ね巻きして、交

互に左右に巻き方向を変えて多重式に密着して次

10 次にコイル状のパラジウム細管を巻きつけて出来  
た多重細管を両端に於いて管板(熱交換器のチニ  
ープレートと同様の板)にパラジウム細管の外

径と同じ穴をあけてさし込み螺付けして固定し細  
管内に一方から水素含有気体を送つてパラジウム

15 細管外に水素を拡散透過させて細管を囲んだ外筒  
内に水素を集める方法が提案されている。この方  
法では管板によつてパラジウム細管が両端で固定

されているからパラジウム細管の熱膨張並びに収  
縮でパラジウム細管1.2×10<sup>-4</sup>cmの膨張張

力がある。この膨張張力は防止されるかも知  
れないが、多重細管の密着による摩擦によつて

この膨張張力は数倍の機会が多くなる欠点があ  
り、且つ強く管内細管の曲げ加工も容易でない。

第2に米国特許第2061062号(1960年)

25 に於いては、長さ500mm、外径3mm、肉厚0.13  
mm程度の真鍮管にパラジウム細管にて管束を形成  
し、一端を封じてパラジウム細管の熱膨張に対す

る保護のために封じた端を自由端として固定した  
り、他端は開口してある状態で固定し、水素

含有気体を外圧として作用させてパラジウム細管  
が内部より内部に純水素を拡散透過させる方法が

提案されている。この方法における最大の欠点は  
パラジウム細管を透過した純水素の圧力が水素

含有気体の圧力に比べると非常に小さいのが普通  
であるから、透過してパラジウム細管内に送んだ

35 純水素はパラジウム細管内を通り抜けて管板の方  
向に移動する際には摩擦抵抗を受けて流れにくい  
大きな欠点がある。しかも、細管の内圧に対して

3

外圧が大きい場合には細管の耐圧性は細管外の外圧に対して内圧が大きい場合に比較して小さく透過速度を高められない欠点があつた。その他の方法として昭和38年特許出願公告第16616号にパラジウム細管をU字型に曲げて曲げられた部分を膨張に対する自由端とし、2個の開口端は管板に取り付けて、一方の口より混合気体を入れて他方の口より不純成分の多い混合気体を放出し、純水素はパラジウム細管外に透過させて集める方法もあるが工作上からも容易でない欠点がある。

上記のパラジウム体の構造に関する諸提案は実際の製作に当たつて困難があると共に水素含有気体から水素を分離精製するための性質上の欠点も多い。

本発明の目的はこれ等の諸欠点を除いて完全なる水素透過機能を発揮させる点にあると共に使用中に特にパラジウム細管に熱的、機械的な破壊力がかからないような構造を有し、かつ可及的に簡易な装置を提供することにある。

すなわち、本発明は(1)実質的に長さの等しい真直ぐなパラジウム合金製細管を細管同志が互に接触しないようになしてその両端部にて気密に固着してパラジウム合金製細管束となし、(2)その一端に直管を有するペローまたはスパイラル管と該細管束の一端とを気密に接続して細管ユニットとなし、(3)管および水素取出管を有する外筒と該細管ユニットとを該細管ユニットの直管および他端にて固定して該外筒内に該細管ユニットを収容し、(4)水素含有気体を該細管ユニットの一端より他端へパラジウム合金製細管内を透過せしめることを特徴とする水素の分離精製装置である。

本発明を図面によつて詳細に説明する。

第1図において、細管束は実質的に長さの等しい真直ぐな数本乃至数百本のパラジウム合金製細管1aをその両端部にて細管同志が互に接触しないようになして固着して構成されている。細管同志の固着は細管両端の1bおよび1cにて簾付により細管の間隙を充填・接着によつて行うかまたは管板を使用して行われる。このとき細管同志の間隙より水素含有気体または水素が漏洩しないよう気密に固着されることを要する。

細管ユニットは、上記の細管束の一端と、ペロー3aに固着されたスリーブ3bとを接続して形成される。またこの細管ユニットのペローに対す

4

管束または管板の外周とスリーブの内縁とは溶接または接着にて気密に接続されこの接続部からも水素含有気体または水素の漏洩があつてはならない。

5 細管ユニットはスリーブ2と、直管3cとを外筒に固着することにより外筒内に収容される。外筒は一般に両端にフランジを有しかつ水素取出管6を有する外筒本体5aと、フランジおよび管を有する蓋5bと、直管3cを貫通させるための小孔とフランジを有する蓋5cとの3部から構成されている。

しかし、蓋5bのフランジとスリーブ2のフランジと外筒本体5aのフランジとの3者をフランジの間隙より気体の漏洩のないように気密に固着する。この固着は例えばボルト締めまたは溶接などにより行う。スリーブ2を外筒に取付けるにはこれ以外の方法でも可能である。例えばスリーブ2のフランジを直接外筒内壁に溶接などにより固着してもよい。なお細管ユニットの一端1bで管板を使用した場合にはスリーブ2を使用することなく該管板を外筒内壁に直接固着することも可能である。

ついで直管3cは蓋5cの小孔に貫通せしめられ、外筒本体5aのフランジと蓋5cのフランジとは上記と同様にしてボルト締めまたは溶接などにより気密に固着して固定される。

さらにペロー3aを蓋5cの小孔より貫通された直管3cを外筒の外側より細管束の反対方向に引張ることにより伸長した状態となし管3cと蓋5cとは小孔部分で溶接または接着などにより気密に固着して固定される。しかしこのときにペローが引張られる長さを操作程度におけるスリーブ2および細管ユニットの膨張分と外筒の膨張分との和とほぼ等しくすることが細管にかかる応力が最小であることより好ましい。

第2図は、第1図において細管ユニットに接続されたペローのかわりにスパイラル管が接続された装置を示すものである。すなわち第2図において3aはスパイラル管、3bはスパイラル管と気密に接続されたスリーブ、および3cはスパイラル管の直管部分である。

第3図は、第1図および第2図における細管ユニットのA-A断面の四分円の拡大図であり、パラジウム合金製細管1a同志が互に接触しないよう

5

スリーブ2または3bに気密に接続された状態を示すものである。すなわちパラジウム合金製細管1aは1bまたは1cにて鑲接または管板を使用することにより互に固着される。かくして得られた細管束は細管束の径または管板より若干大きい径のスリーブ2または3bに細管束または管板の外周とスリーブの内縁とを気密に鑲接または溶接にて固着されている。

なお外筒内の細管ユニットは1個でも複数個でもよい。

本発明の装置を使用するには水素含有気体を装置の一端より他端へ約500℃に加熱されたパラジウム合金製細管内を一定方向に通過させ、パラジウム合金製細管壁を透過した水素は外筒内へ集められ水素取出管6より装置外へ導出され、管壁より透過されなかつた残りの気体は他端より装置外へ排出される。第1図および第2図において管4を入口とする場合には直管3cが出口となり、直管3cを入口とする場合には管8が出口となる。

本発明装置のパラジウム合金製細管以外の例えばベロー、スパイラル管および外筒などの材質はステンレスなどの耐熱鋼であることが好ましい。

本発明において、パラジウム合金製細管束を加熱するには該細管束を巻いたニクロム線の電熱によつても達成される。間接的には水素含有気体をあらかじめ500℃付近に加熱してパラジウム合金製細管内に圧入しても同様な結果が得られる。このとき真直なパラジウム合金製細管束は熱によつて膨張して伸びるが、この膨張による伸びは細管ユニットの伸縮自在なベローまたはスパイラル管によつて吸収されてパラジウム合金製細管の破損は完全に防止される。

本発明に於いて、パラジウム合金製細管を使用する理由は細管の径が小さい程細管の耐圧性が増加し、最高使用耐圧性が満足されればそれ以上の耐圧性は必要なくなるので、細管の肉厚を薄くし得て水素の透過速度を高め得るからである。しかも、細管の径が小さい程細管内の単位体積に對

6

する細管の表面積が増加するので、一定濃度の水素の混合気体を一定流速で使用した場合、細管内の水素の分圧が等しくなる距離を短くし得るので、上記条件に加えて一定長さの管を使用する場合には細管の径が小さい程水素の回収率を高め得るからである。

本発明により、パラジウム合金製細管の膨張による伸びは吸収されて細管を破損から守ることが出来る。

10 さらに本発明に於いて、ユニットの両端はそれぞれ外筒に固定されているので外部から来る振動及びその他の機械的衝動に対して丈夫であり、且つ製作が極めて容易である利点がある。

さらに本発明はいわゆる内圧式であるために、15 外圧式に比して次の様な利点をも有する。すなわち同一壁厚でより高い圧力が採用でき、パラジウム合金製の単位面積当たりの水素の透過量を増加しうる。また同一圧力の場合には耐圧度が大きいため破損を防止しうる。

#### 20 特許請求の範囲

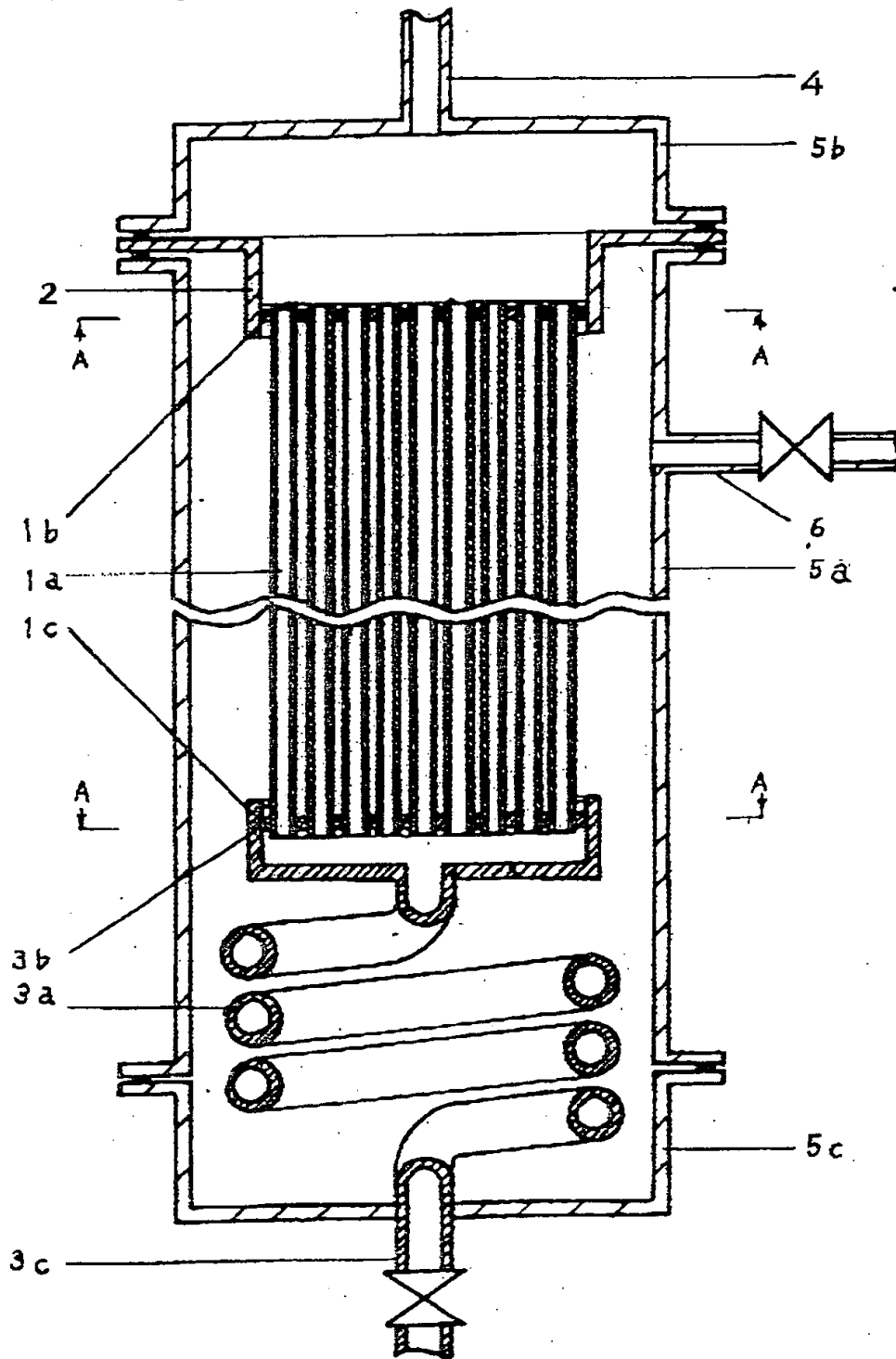
1 (1)実質的に長さの等しい真直ぐなパラジウム合金製細管を細管同志が互に接触しないようになしてその両端部にて気密に固着してパラジウム合金製細管束となし、(2)その一端に直管を有するベローまたはスパイラル管と該細管束の一端とを気密に接続して細管ユニットとなし、(3)管および水素取出管を有する外筒と該細管ユニットとを該細管ユニットの直管および他端にて固定して該外筒内に該細管ユニットを収容し、(4)水素含有気体を該細管ユニットの一端より他端へパラジウム合金製細管内を通過せしめることを特徴とする水素の分離精製装置。

#### 35 引用文献

化学機械協会編 「化学工学辞典」 昭和30年  
9月10日 第188ページ 「ベロー」の項 丸善株式会社発行



図 2



## 图 3

